

Высокочастотный сдвиг и расширение спектра генерации ТГц излучения до 10 ТГц в процессе оптического выпрямления мощного фемтосекундного малопериодного излучения накачки ближнего ИК диапазона в кристалле BNA

Б. В. Румянцев¹⁾, Н. А. Жидовцев, А. В. Пушкин, Е. А. Лобушкин, П. А. Шулыгин, Д. З. Сулейманова, А. Б. Савельев-Трофимов, Ф. В. Потёмкин

Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 26 октября 2023 г.

После переработки 3 ноября 2023 г.

Принята к публикации 4 ноября 2023 г.

Осуществлена генерация терагерцевого излучения при накачке кристалла BNA фемтосекундным лазерным излучением системы на кристалле Cr:Forsterite с длиной волны 1.24 мкм с длительностью импульса 100 и 35 фс и плотностью накачки на уровне 10 мДж/см². Достигнутая эффективность генерации составила 0.1 %. Установлено, что уменьшение длительности импульса накачки от 100 до 35 фс приводит к появлению в спектре терагерцевого излучения высокочастотных компонент в области 2.5–6.5 ТГц и 9–10.5 ТГц. Моделирование процесса генерации терагерцевого излучения на основе решения уравнений Максвелла методом FDTD позволило корректно описать измеренные спектры. Формирование широкополосного высокочастотного терагерцевого излучения в продемонстрированной схеме генерации на основе кристалла BNA с накачкой Cr:Forsterite лазерной системой позволяет рассматривать данную схему в качестве альтернативы источникам с накачкой кристалла BNA Ti:Sapphire лазерными системами.

DOI: 10.31857/S1234567823230039, EDN: mumlnh

Введение. В настоящее время генерация мощного терагерцевого (ТГц) излучения (0.1–10 ТГц) является объектом активных научных исследований в связи с развитием нелинейной оптики в ТГц диапазоне, где рассматривается силовое воздействие ТГц импульсов на вещество [1], и различного рода приложений, в которых ТГц излучение используется в качестве канала неинвазивной диагностики. Так, множество молекулярных комплексов имеет линии резонансного поглощения в ТГц диапазоне частот, что позволяет использовать источники ТГц излучения в задачах спектроскопии с временным разрешением и мультиспектральной визуализации [2]. В отличие от импульсов оптического и ультрафиолетового диапазонов, фотоны ТГц диапазона обладают достаточно низкой энергией (0.4–124 мэВ), за счет чего возможно проведение неинвазивной диагностики биологических тканей [3], а также исследование низкоэнергетических возбуждений вращательных и колебательных уровней молекул, колебаний решеток, а также возбуждений связанных электронно-дырочных пар [4]. С помощью интенсивных импульсов ТГц диапазона (с напряженностью поля порядка МВ/см)

открываются новые возможности для исследования взаимодействия ТГц излучения с веществом, включая процессы генерации гармоник, просветление, а также ударную ионизацию [5, 6].

В связи с наличием большого числа приложений мощного ТГц излучения были предложены различные источники и методы его генерации [7, 8], включая оптическое выпрямление в нелинейных органических [9] и неорганических кристаллах [6], а также филаментацию в газах [11].

В случае генерации ТГц импульсов на основе двухцветной филаментации в газах эффективность оптико-терагерцевого преобразования остается достаточно низкой и составляет порядка $\sim 0.01\%$ [12–14]. При этом увеличение энергии генерируемого ТГц излучения может быть реализовано за счет увеличения энергии накачки, а именно за счет использования лазерных систем высокой мощности [15, 16], что связано с отсутствием повреждения газовых сред, которое позволяет использовать лазерное излучение высокой интенсивности, не ограничивая энергию накачки. Однако существенным недостатком данного метода является сильная угловая расходимость и коническая структура ТГц излучения [17]. Более высокая эффективность генерации

¹⁾e-mail: rumjancev.bv15@physics.msu.ru

ТГц излучения наблюдается при генерации в нелинейных неорганических кристаллах на основе оптического выпрямления. Так, эффективность оптико-терагерцевого преобразования в этом случае составляет порядка 0.1 % [18].

Эффективная генерация ТГц импульсов длительностью в несколько периодов поля с напряженностью поля до десятков МВ/см и эффективностью оптико-терагерцевого преобразования до 3 % [19–21] стала доступна лишь недавно с появлением органических кристаллов, таких как DAST, DSTMS, OH1 и BNA [9]. Данные кристаллы обеспечивают высокую нелинейность и прозрачны как для оптической накачки, так и для ТГц поля, что делает процесс оптического выпрямления наиболее эффективным, однако дисперсионные свойства этих материалов требуют наличия источника накачки ближнего ИК-диапазона (1.2–1.5 мкм) [22]. При этом эффективность преобразования в органических кристаллах ограничена процессом многофотонного поглощения и, как следствие, порогом пробоя данных кристаллов.

Кристалл BNA [23] является перспективным материалом для генерации ТГц излучения, поскольку он обладает достаточно высокими значениями порога пробоя $\sim 1 \text{ ТВт/см}^2$ [24] и электрооптического коэффициента r [25], сопоставимыми с характеристиками более популярного органического кристалла DAST. На данный момент BNA широко применяется в схемах с накачкой Ti:Sapphire лазером на длине волны 0.8 мкм [23], для которой обеспечивается согласование групповых скоростей взаимодействующих импульсов ТГц поля и оптической накачки в частотном диапазоне до 15 ТГц [26]. Однако, дисперсионные свойства данного кристалла позволяют использовать и более длинноволновое излучение в качестве накачки [27]. Более того, переход к более длинноволновой накачке позволяет использовать большие интенсивности излучения накачки за счет уменьшения влияния эффекта двухфотонного поглощения.

К настоящему моменту генерация ТГц импульсов в кристалле BNA с длинноволновой накачкой осуществлялась с использованием излучения параметрического усилителя [27], где отсутствует возможность управления спектрально-временными параметрами генерирующего излучения, которые значительно влияют на форму и ширину спектра генерируемых импульсов ТГц поля [28]. В связи с этим твердотельная лазерная система на кристалле Cr:Forsterite, генерирующая фемтосекундное излучение на длине волны 1.24 мкм с возможностью chirpирования и сокращения длительности генери-

руемых импульсов, а также имеющая перспективы к наращиванию пиковой и средней мощности излучения [15], является перспективным источником для накачки кристалла BNA. Сокращение длительности данного излучения позволяет расширить спектр ТГц излучения в сторону больших частот. Таким образом, генерация ТГц излучения при накачке кристалла BNA лазерным излучением системы на кристалле Cr:Forsterite может рассматриваться в качестве альтернативы стандартным схемам на основе комбинации кристалла BNA и лазерной системы на кристалле Ti:Sapphire.

Численная модель. Для описания полученных экспериментальных результатов по генерации ТГц излучения в органическом кристалле BNA ультракороткими импульсами хром-форстеритового лазера было проведено численное моделирование, основанное на решении уравнений Максвелла, включающих нелинейный отклик среды – в том числе трехволновое взаимодействие. Необходимость такого подхода определяется тем фактом, что малая длительность импульса (35 фс), составляющая порядка 9-ти колебаний поля, делает затруднительным использование приближения медленно меняющихся амплитуд, применявшегося ранее в работе [28].

Процессы генерации суммарной и разностной частот рассматривались в рамках разложения нелинейной поляризации вещества в приближении слабого поля до членов третьего порядка [29], а также в приближении плоского волнового фронта с учетом материальной дисперсии и поглощения в органическом кристалле BNA в спектральном диапазоне до 10 ТГц. Используемая модель учитывает нелинейные процессы второго и третьего порядков, отвечающие за генерацию разностной частоты (оптическое выпрямление), в том числе каскадный эффект, а также генерацию третьей оптической гармоники, попадающей в область поглощения кристалла. Также в модели учитывалось двухфотонное и однофотонное поглощение. Нелинейные эффекты самовоздействия на нелинейности третьего и выше порядков для излучения накачки не учитывались в силу малости их вклада в процесс взаимодействия излучения с веществом. Так, отношение длины кристалла к нелинейной длине составляло $L/L_{nl} = 0.8 \cdot 10^{-3}/40 = 2 \cdot 10^{-5}$ для длительности импульса накачки 100 фс и $L/L_{nl} = 0.8 \cdot 10^{-3}/10 = 8 \cdot 10^{-5}$ для 35 фс (считая $n_2 = 6.76 \cdot 10^{-18} \text{ м}^2/\text{Вт}$ [30]). Помимо этого, в модель входит расстройка и дисперсия групповых скоростей взаимодействующих импульсов, а также линейное поглощение оптического и ТГц излучения в кристалле.

С учетом перечисленных приближений, процесс генерации ТГц излучения в органическом кристалле BNA на основе эффекта оптического выпрямления описывается уравнениями Максвелла:

$$\begin{cases} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} = \nabla \times \mathbf{H} \\ \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} = -\frac{1}{\mu_0} \nabla \times \mathbf{E} \end{cases} \quad (1)$$

где $\mathbf{D}(\omega) = \varepsilon_0 \cdot \varepsilon_r^*(E, \omega) \cdot \mathbf{E}(\omega)$ – вектор электрической индукции, $\varepsilon_r^*(E, \omega) = \varepsilon_\infty + \chi^{(1)}(\omega) + \chi^{(2)}(\omega) \cdot E(\omega) + \chi^{(3)}(\omega) \cdot E(\omega)E^*(\omega)$ – относительная диэлектрическая проницаемость среды, t – время, ∇ – оператор Гамильтона, $\mathbf{H}$ – вектор магнитной напряженности, $\mathbf{E}$ – вектор электрической напряженности, ω – угловая частота, ε_0 – диэлектрическая проницаемость вакуума, $\chi^{(n)}$ – диэлектрическая восприимчивость среды n -го порядка.

Для описания линейного отклика среды используется модель суммы Лоренцевских осцилляторов:

$$\chi^{(1)}(\omega) = \sum_{l=1}^L \frac{\Delta \varepsilon_l \omega_{0,l}^2}{\omega_{0,l}^2 + 2i\omega\nu_l - \omega^2}, \quad (2)$$

где L – количество осцилляторов, $\Delta \varepsilon_l$ – сила l -го осциллятора, ν_l – коэффициент затухания l -го осциллятора, $\omega_{0,l}$ – собственная частота l -го осциллятора, i – мнимая единица.

С использованием формализма метода конечных разностей с шагами Δx и Δt [31], метода Ньюмарка [32], а также следующих подстановок:

$$\begin{cases} \tilde{\mathbf{E}} = \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \mathbf{E} \\ \tilde{\mathbf{D}} = \sqrt{\frac{1}{\mu_0 \varepsilon_0}} \mathbf{D} \\ \tilde{\mathbf{P}} = \sqrt{\frac{1}{\chi^{(1)}}} \mathbf{E} \\ \Delta t = \frac{\Delta x}{2c} \end{cases}, \quad (3)$$

где μ_0 – магнитная постоянная, $\tilde{\mathbf{P}}$ – вектор поляризации среды, Δt – шаг сетки по времени, Δx – шаг сетки по пространству, c – скорость света в вакууме, была получена следующая система уравнений для пространственно-временной разностной сетки:

$$\begin{cases} \tilde{D}_x^{n+\frac{1}{2}}(k) = \tilde{D}_x^{n-\frac{1}{2}}(k) + \frac{H_y^n(k+\frac{1}{2}) - H_y^n(k-\frac{1}{2})}{2} \\ \varepsilon_\infty \tilde{E}_x^{n+\frac{1}{2}}(k) = \tilde{D}_x^{n+\frac{1}{2}}(k) - \sum_{l=1}^L \tilde{P}_{x,l}^{n-\frac{1}{2}}(k) - \chi^{(2)} \left[\tilde{E}_x^{n-\frac{1}{2}}(k) \right]^2 - \chi^{(3)} \left\{ 3 \left[\tilde{E}_x^{n-\frac{1}{2}}(k) \right]^2 \tilde{E}_x^{n+\frac{1}{2}}(k) - 2 \left[\tilde{E}_x^{n-\frac{1}{2}}(k) \right]^3 \right\} \\ \tilde{P}_{x,l}^{n+\frac{1}{2}}(k) = \omega_{1,l} \tilde{P}_{x,l}^{n-\frac{1}{2}}(k) + \omega_{2,l} \tilde{P}_{x,l}^{n-\frac{3}{2}}(k) + u_{0,l} \tilde{E}_x^{n+\frac{1}{2}}(k) + u_{1,l} \tilde{E}_x^{n-\frac{1}{2}}(k) + u_{2,l} \tilde{E}_x^{n-\frac{3}{2}}(k) \\ H_y^{n+1}(k+1/2) = H_y^n(k+1/2) - \frac{E_x^{n+1/2}(k+1) - E_x^{n+1/2}(k)}{2} \end{cases} \quad (4)$$

где коэффициенты $\omega_{n,l}$ и $u_{n,l}$ считаются в соответствии с [32] для каждого Лоренцевского осциллятора. Поле накачки, считая, что на вход кристалла подается гауссов импульс, может быть задано в виде:

$$\begin{aligned} \tilde{E}_{\text{оп}}(t) &= \left[\frac{1}{2} E_{0\text{оп}} e^{-2 \ln 2 \left(\frac{t}{\Delta t_{\text{оп}}} \right)^2} e^{i\omega t} + \text{c.c.} \right] \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}}, \\ \tilde{E}_x^{n+\frac{1}{2}}(k_{\text{source}}) &= \tilde{E}_{\text{оп}} \left(\Delta t \left(n + \frac{1}{2} \right) - t_{\text{shift}} \right). \end{aligned} \quad (5)$$

Также соблюдаются следующие начальные и граничные условия:

$$\begin{aligned} \tilde{E}_x^{\frac{1}{2}} &= \tilde{D}_x^{\frac{1}{2}} = \tilde{P}_x^{\frac{1}{2}} = H_y^1 = 0, \\ \tilde{E}_x^{n+1/2}(1) &= \tilde{E}_x^{n-2+1/2}(2), \\ \tilde{E}_x^{n+1/2}(N) &= \tilde{E}_x^{n-2+1/2}(N-1), \end{aligned} \quad (6)$$

где $E_{\text{оп}}$ – поле волны накачки оптического диапазона, $\Delta t_{\text{оп}}$ – длительность импульса. Численное решение уравнений проводилось на языке Python [33]

с использованием библиотеки быстрых вычислений Numexpr.

Основные характеристики кристалла BNA, используемые в моделировании, рассчитывались следующим образом. Диэлектрическая проницаемость во всем диапазоне частот рассчитывалась по модели осцилляторов Лоренца, где в оптическом диапазоне для аппроксимации была использована формула Селлмейера [34], а для подбора параметров в ТГц диапазоне использовался спектр поглощения кристалла [26]. Также множественные линии поглощения в области дальнего ИК были заменены на одну суммарную линию с поглощением на длине волны 7 мкм, не попадающую в диапазон исследуемых длин волн. Эти линии были заменены по двум причинам. Во-первых, в литературе отсутствует информация о данных линиях с частотой дискретизации, достаточной для вычислений. Во-вторых, при добавлении данной группы линий уменьшается быстро-

действие вычислений, поскольку вычисление отклика осцилляторов составляет существенную часть вычислений. Именно поэтому множественные линии в данной области были заменены на одну. Это физически корректно, поскольку в данной области спектра отсутствует исследуемое излучение. При этом данная замена позволяет получить гладкую непрерывную функцию показателя преломления и коэффициента поглощения. Фактически, данная замена аналогична подходу, описанному в работе [35].

Использованный в моделировании коэффициент эффективной нелинейности d_{eff} выражается через показатель преломления и электрооптический коэффициент как $d_{\text{eff}} = 1/4 \cdot n^4 r_{\text{eff}}$. В случае использования излучения накачки хром-форстеритового лазера на длине волны 1.24 мкм его значение составляет 116 пм/В. Значения электрооптического коэффициента, отвечающего за оптическое выпрямление, были получены из работы [36]. Учитывалось, что кристалл ориентирован на максимум генерации, поэтому значение электрооптического коэффициента r_{eff} принималось равным $r_{\text{eff}} = r_{111}$. Диэлектрическая постоянная вещества вне кристалла считается равной диэлектрической постоянной вакуума.

Экспериментальная установка. Схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. В качестве источника накачки органического кристалла BNA использовалась лазерная система на кристалле Cr:Forsterite (длина волны 1.24 мкм, длительность импульса 100 фс (FWHM), энергия в импульсе до 16 мДж (в эксперименте используется 3.5 мДж), частота повторения 10 Гц) [15]. Для сокращения длительности импульса накачки проводилось уширение спектра излучения за счет эффекта фазовой самомодуляции при прохождении импульса через кювету, заполненную газовой средой, а также последующей компенсации возникающего чирпа с использованием чирпирующих зеркал. Такая схема с пропусканием 50 % по энергии, потери в которой обусловлены Френелевским отражением на окнах кюветы и многократными отражениями от зеркал, позволил получить импульсы длительностью 35 фс по уровню FWHM, близкой к спектрально ограниченной длительности (TBP = 0.5), с энергией 1.5 мДж (см. вставку на рис. 1).

Для генерации ТГц излучения импульс накачки направлялся на кристалл BNA (6 × 0.8 мм, Swiss Terahertz), сориентированный под максимум оптико-терагерцевого преобразования. Для изменения энергии генерирующего импульса длительностью 100 фс использовалась сборка из полуволновой пластинки и поляризатора, установленных перед компрессором.

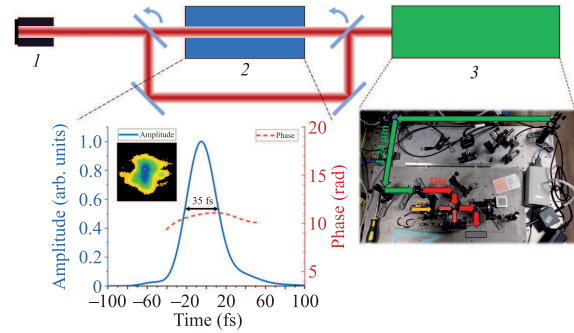


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема экспериментальной установки. 1 – лазерная система на кристалле Cr:Forsterite, параметры: $\lambda = 1.24$ мкм, $\tau = 100$ фс (FWHM), $E = 3.5$ мДж. 2 – Этап компрессии лазерного импульса, параметры импульса на выходе $\tau = 35$ фс (FWHM), $E = 1.5$ мДж. 3 – Интерферометр Майкельсона

Для блокирования излучения накачки и выделения ТГц излучения использовался фильтр Tydex LPF23.4. Для характеристики спектра генерируемого ТГц излучения методом Фурье-спектроскопии использовалась регистрация автокорреляционной функции (АКФ) 1-го порядка (АКФ поля) в схеме интерферометра Майкельсона, где в качестве светоделиителя использовалась пластина из высокоомного кремния (Tydex HRFZ-Si). Для регистрации ТГц излучения в области энергий мкДж-уровня использовался пьезоэлектрический детектор Gentec QE8SP-B-BC-D0 с размером приемной апертуры $\sim 8 \times 8$ мм. Для регистрации энергий нДж-уровня использовался детектор Голея (Tydex GC-1P) с размером приемной апертуры 6 мм. Фокусировка ТГц излучения в пятно размером ~ 1 мм по уровню $1/e^2$ при регистрации гарантировало измерение полной энергии импульса ТГц излучения с использованием обоих детекторов.

Результаты и обсуждение. На рисунке 2 представлена зависимость энергии ТГц импульса и эффективности его генерации от плотности энергии импульса накачки длительностью 100 фс. Как свидетельствует график на рис. 2, в области плотностей энергии накачки 1–15 мДж/см² не наблюдается насыщения эффективности генерации. Накачка кристалла BNA импульсами с длительностью 35 фс и энергией 1.5 мДж с соответствующей плотностью энергии 9.6 мДж/см² приводила к генерации ТГц импульса с энергией 2.2 мкДж. Повышение эффективности генерации при сохранении плотности энергии накачки по сравнению с накачкой импульсами длительностью 100 фс объясняется увеличением интен-

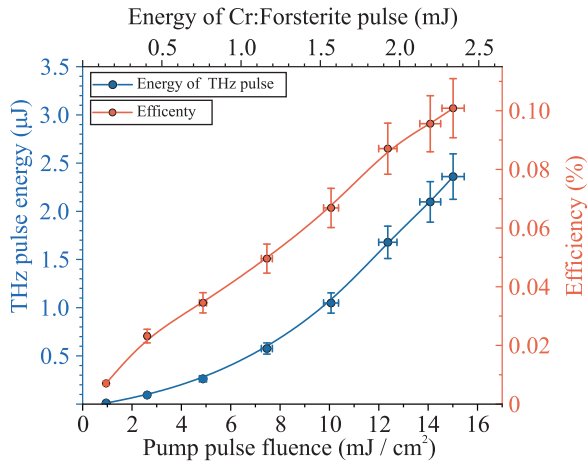


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость энергии ТГц импульса и эффективности его генерации от плотности энергии импульса накачки длительностью 100 фс

сивности импульса накачки за счет сокращения его длительности.

В эксперименте не наблюдалось пробоя кристалла BNA при накачке в диапазоне использованных плотностей энергии 1–15 мДж/см². В опубликованной работе [23] сообщается о пороге пробоя кристалла BNA на уровне 6 мДж/см² при накачке на длине волны 0.8 мкм импульсами с длительностью 50 фс и частотой повторения 100 Гц, что ограничивало энергию ТГц импульса значением в 0.54 мкДж. В работе [37] сообщается о пороге пробоя на уровне 4 мДж/см² при накачке на длине волны 0.8 мкм импульсами длительностью 100 фс с частотой повторения 500 Гц и 2 мДж/см² при частоте повторения 1 кГц. В работе [27] сообщается о том, что при накачке на длине волны 1.2 мкм импульсами с длительностью на уровне 35 фс с частотой повторения 1 кГц порог пробоя составляет не меньше 10 мДж/см², что связано с уменьшением коэффициента двухфотонного поглощения при увеличении длины волны накачки. Таким образом, в рамках текущей работы можно дополнить данное значение: так, при накачке на длине волны 1.24 мкм импульсами с длительностью 100 фс и 35 и частотой повторения 10 Гц порог пробоя не ниже 16 и 9.6 мДж/см², что позволяет получить ТГц импульсы с энергией более 2 мкДж.

На рисунке 3 представлены спектры ТГц излучения, полученные при накачке кристалла BNA импульсами с длительностью 100 фс и 35 фс. Поскольку ТГц излучение генерируется в органическом кристалле по механизму генерации разностной частоты между спектральными компонентами импульса накачки, то расширение его спектра при уменьше-

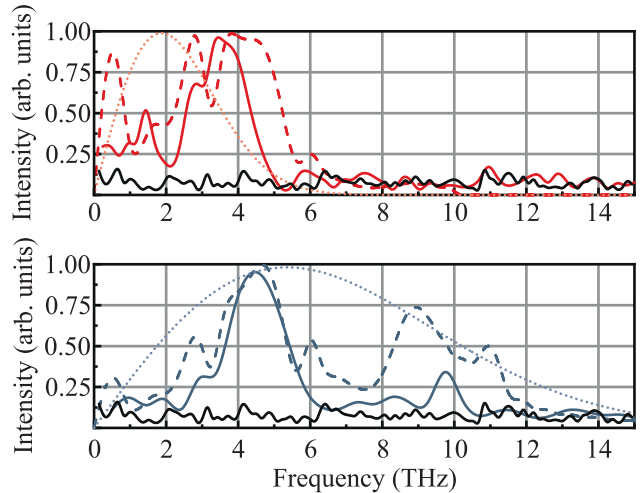


Рис. 3. (Цветной онлайн) Спектр ТГц излучения, полученного в кристалле BNA при накачке импульсами длительностью 100 фс с плотностью энергии накачки 15 мДж/см² (сверху) и 35 фс с плотностью энергии накачки 9.6 мДж/см² (снизу). Сплошной прямой показаны экспериментальные спектры, пунктиром – зависимость, полученная на основе численного моделирования FDTD, точками – на основе выражения (7). Черной линией обозначен шумовой спектр, полученный при измерениях в отсутствие импульса накачки кристалла

нии длительности приводит к появлению в спектре ТГц излучения более высокочастотных компонент, что наблюдается в эксперименте (рис. 3). Так, при уменьшении длительности импульса исходный спектр в диапазоне 2–5 ТГц переходит в диапазон 2.5–6.5 ТГц с возникновением дополнительного пика в области 9–10.5 ТГц. Спектр ТГц излучения при накачке импульсами с длительностью 100 фс лежит в диапазоне до 5 ТГц и имеет характерный провал на 2 ТГц, связанный с линией поглощения, что согласуется с литературными данными, где осуществлена генерация при накачке излучением на длине волны 1250 нм, полученным в схеме параметрического усиления [38]. Важно отметить, что нелинейно-оптическое расширение спектра излучения накачки без компенсации возникающего чирпа не будет приводить к появлению более высокочастотных компонент, поскольку ширина спектра ТГц излучения определяется мгновенными временным перекрытием спектральных компонент импульса накачки в нелинейном кристалле, что подтверждается экспериментальными результатами [28].

Как было указано в рамках предыдущей работы [28], при накачке кристалла BNA лазерным излучением системы на кристалле Cr:Forsterite с длительностью импульса 100 фс спектрально-ограниченная

длительность ТГц импульса, определенная исходя из ширины измеренного спектра, составляет ~ 660 фс. Поскольку множественные экспериментальные данные, полученные в рамках измерения временной формы ТГц-импульса методом электро-оптического детектирования [9, 38] свидетельствуют о том, что при генерации ТГц излучения по механизму оптического выпрямления в кристаллах формируется практически спектрально-ограниченный ТГц импульс, то можно утверждать, что оценка длительности огибающей ТГц-импульса ~ 660 фс при накачке импульсами длительностью 100 фс является корректной. При этом, как показано на рис. 3, при накачке кристалла BNA импульсами длительностью 30 фс основная часть спектра, лежащая в окрестности 4.5 ТГц и в значительной степени определяющая временную форму ТГц импульса, имеет примерно такую же спектральную ширину, как и в случае накачки с длительностью 100 фс. Более высокочастотные составляющие в спектре, имеющие меньшую спектральную амплитуду, при этом будут давать высокочастотные осцилляции во временной форме импульса. Поэтому длительность ТГц-импульса при длительности импульса накачки 30 фс также может быть оценена как ~ 660 фс.

Эффект появления высокочастотных компонент в спектре ТГц излучения может быть качественно описан на основе аналитических выражений для спектра и временной формы ТГц импульса. Так, при выполнении условия фазового синхронизма в приближениях заданного поля, непоглощающей и не диспергирующей среды спектр и временная форма ТГц импульса могут быть выражены следующим образом [39]:

$$E_{THz}(\Omega) \propto \Omega \cdot \int_0^\infty A_{op}(\omega + \Omega) A_{op}^*(\omega) d\omega, \quad (7)$$

$$E_{THz}(t) \propto \frac{\partial |A_{op}(t)|^2}{\partial t},$$

где t – время в бегущей системе координат, z – координата распространения, ω – угловая частота излучения накачки, Ω – угловая частота терагерцевого излучения, $A_{op}(\omega)$ и $A_{op}(t)$ – амплитуда импульса накачки в спектральном и временном представлениях соответственно. В соответствии с выражением (7) импульс ТГц поля во временном представлении имеет форму первой производной интенсивности поля накачки. При анализе формы спектра, полученного согласно выражению (7), можно отметить, что ширина спектра ТГц импульса пропорциональна ширине спектра оптического импульса накачки, а максимум генерации наблюдается на частоте $\nu = 0.44 \cdot \sqrt{2}/\pi \cdot \tau$,

где τ – длительность импульса накачки по уровню FWHM. Так, при уменьшении длительности импульса накачки в ~ 3 раза (с 100 до 35 фс) максимум спектра ТГц излучения сдвигается с 2 до 5.6 ТГц, что отражено на рис. 3.

Отличия между аналитическими и экспериментальными спектрами связаны с дисперсионными свойствами кристалла BNA, которые не учитываются в рамках аналитической модели (7). Для учета этих свойств был проведен численный расчет спектра ТГц излучения на основе решения уравнений Максвелла методом FDTD, описание которого приведено выше. Результаты расчета приведены на рис. 3. Используемая теоретическая модель описывает основные спектральные особенности генерируемого ТГц излучения, обусловленные дисперсионными свойствами кристалла и эффектами распространения, остаточные отличия в высокочастотной области могут объясняться влиянием поглощения паров воды в воздухе [40] при относительной влажности на уровне 35 %. Это позволяет описать как сдвиг спектра в высокочастотную область при сокращении длительности импульса накачки, так и проявление полос поглощения кристалла BNA в спектре ТГц излучения.

Частотный диапазон полученного ТГц излучения при накачке кристалла BNA импульсами с длительностью 35 фс лежит в диапазонах 2.5–6.5 ТГц и 9–10.5 ТГц, что свидетельствует о генерации более высокочастотного излучения, чем при накачке импульсами длительностью 100 фс на длине волны 0.8 мкм лазерной системой на кристалле Ti:Sapphire (0.1–5 ТГц), а также при накачке импульсами длительностью 100 фс на длине волны 1250 нм, полученными в результате параметрического усиления (0.5–5 ТГц) [38]. При этом в сравнении со случаем генерации в кристалле BNA импульсами с длительностью 35 фс на длине волны 1150 нм [27], сгенерированными в схеме параметрического усиления, в полученном в данной работе спектре имеется дополнительный пик на частотах 9–10.5 ТГц.

Заключение. В рамках проведенных исследований впервые осуществлена генерация ТГц излучения в кристалле BNA фемтосекундным лазерным излучением системы на кристалле Cr:Forsterite. Установлено, что в диапазоне плотностей энергии накачки 1–15 мДж/см² не наблюдается насыщения эффективности генерации, максимальная эффективность генерации составила 0.1 %. Показано, что уменьшение длительности импульса накачки с 100 до 35 фс приводит к смещению спектра ТГц излучения в высокочастотную область и появлению дополнитель-

ной спектральной компоненты на частоте 10 ТГц, что свидетельствует о генерации широкополосного для кристалла ВНА терагерцевого излучения на частотах 2.5–6.5 ТГц и 9–10.5 ТГц. Установлено, что моделирование процесса генерации с учетом дисперсионных свойств кристалла на основе прямого решения уравнений Максвелла методом FDTD позволяет корректно описать спектр генерируемого ТГц импульса как в случае длинного (100 фс, 24 цикла поля), так и в случае короткого (35 фс, 9 циклов поля) импульса накачки, что недоступно с использованием приближения медленно меняющейся амплитуды. Полученные результаты позволяют рассматривать кристалл ВНА с накачкой Cr:Forsterite лазерной системой в качестве альтернативы как источникам на основе кристалла ниобата лития, так и источникам на основе кристалла ВНА с накачкой Ti:Sapphire лазерными системами.

Исследование выполнено в рамках научной программы Национального центра физики и математики (проект “Физика высоких плотностей энергии. Этап 2023-2025”). Румянцев Б.В. и Сулейманова Д.З. являются стипендиатами фонда развития теоретической физики и математики “БАЗИС”.

1. Y. Zhang, K. Li, H. Zhao, *Frontiers of Optoelectronics* **14**(1), 4 (2021); issn: 2095-2759, 2095-2767; doi: 10.1007/s12200-020-1052-9; URL: <https://link.springer.com/10.1007/s12200-020-1052-9>.
2. S.W. Smye, J.M. Chamberlain, A.J. Fitzgerald, and E. Berry, *Phys. Med. Biol.* **46**(9), R101 (2021); issn: 0031-9155, 1361-6560; doi: 10.1088/0031-9155/46/9/201; URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0031-9155/46/9/201>.
3. L. Yu, L. Hao, T. Meiqiong, H. Jiaoqi, L. Wei, D. Jinying, C. Xueping, F. Weiling, and Z. Yang, *RSC Adv.* **9**(17), 9354 (2019); issn: 2046-2069; doi: 10.1039/C8RA10605C; URL: <http://xlink.rsc.org/?DOI=C8RA10605C>.
4. T. Kampfrath, K. Tanaka, and K.A. Nelson, *Nat. Photonics* **7**(9), 680 (2013); issn: 1749-4885, 1749-4893; doi: 10.1038/nphoton.2013.184; URL: <https://www.nature.com/articles/nphoton.2013.184>.
5. X.C. Zhang, A. Shkurinov, and Y. Zhang, *Nat. Photonics* **11**(1), 16 (2017); issn: 1749-4885, 1749-4893; doi: 10.1038/nphoton.2016.249; URL: <https://www.nature.com/articles/nphoton.2016.249>.
6. O. V. Chefonov, A. V. Ovchinnikov, S. A. Romashevskiy, X. Chai, T. Ozaki, A.B. Savel'ev, M.B. Agranat, and V.E. Fortov, *Opt. Lett.* **42**(23), 4889 (2017); issn: 0146-9592, 1539-4794; doi: 10.1364/OL.42.004889; URL: <https://opg.optica.org/abstract.cfm?URI=ol-42-23-4889>.
7. K. Reimann, *Rep. Prog. Phys.* **70**(10), 1597 (2007); issn: 0034-4885, 1361-6633; doi: 10.1088/0034-4885/70/10/R02; URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0034-4885/70/10/R02>.
8. R. Lewis, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **47**(37), 374001 (2014); issn: 0022-3727, 1361-6463; doi: 10.1088/0022-3727/47/37/374001; URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0022-3727/47/37/374001>.
9. M. Jazbinsek, U. Puc, A. Abina, and A. Zidansek, *Appl. Sci.* **9**(5), 882 (2019); issn: 2076-3417; doi: 10.3390/app9050882; URL: <https://www.mdpi.com/2076-3417/9/5/882>.
10. F. Junginger, A. Sell, O. Schubert, B. Mayer, D. Brida, M. Marangoni, G. Cerullo, A. Leitenstorfer, and R. Huber, *Opt. Lett.* **35**(15), 2645 (2010); issn: 0146-9592, 1539-4794; doi: 10.1364/OL.35.002645; URL: <https://opg.optica.org/abstract.cfm?URI=ol-35-15-2645>.
11. H. Roskos, M. Thomson, M. Kreß, and T. Löffler, *Laser Photonics Rev.* **1**(4), 349 (2007); issn: 18638880, 18638899; doi: 10.1002/lpor.200710025; URL: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/lpor.200710025>.
12. T.I. Oh, Y.S. You, N. Jhajj, E.W. Rosenthal, H.M. Milchberg, and K.Y. Kim, *New J. Phys.* **15**(7), 075002 (2013); issn: 1367-2630; doi: 10.1088/1367-2630/15/7/075002; URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1367-2630/15/7/075002>.
13. T.I. Oh, Y.J. Yoo, Y.S. You, and K.Y. Kim, *Appl. Phys. Lett.* **105**(4), 041103 (2014); issn: 0003-6951, 1077-3118; doi: 10.1063/1.4891678; URL: <https://pubs.aip.org/apl/article/105/4/041103/376624/Generation-of-strong-terahertz-fields-exceeding-8>.
14. D. Kuk, Y.J. Yoo, E.W. Rosenthal, N. Jhajj, H.M. Milchberg, and K.Y. Kim, *Appl. Phys. Lett.* **108**(12), 121106 (2016); issn: 0003-6951, 1077-3118; doi: 10.1063/1.4944843; URL: <https://pubs.aip.org/apl/article/108/12/121106/29958/Generation-of-scalable-terahertz-radiation-from>.
15. A. Pushkin, E. Migal, D. Suleimanova, E. Mareev, and F. Potemkin, *Photonics* **9**(2), 90 (2022); issn: 2304-6732; doi: 10.3390/photonics9020090; URL: <https://www.mdpi.com/2304-6732/9/2/90>.
16. C.N. Danson, C. Haefner, J. Bromage et al. (Collaboration), *High Power Laser Science and Engineering* **7**, e54 (2019); issn: 2095-4719, 2052-3289; doi: 10.1017/hpl.2019.36; URL: https://www.cambridge.org/core/product/identifier/S2095471919000367/type/journal_article.

17. C. D'Amico, A. Houard, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, A. Couairon, and V.T. Tikhonchuk, *Phys. Rev. Lett.* **98**(23), 235002 (2007); issn: 0031-9007, 1079-7114; doi: 10.1103/PhysRevLett.98.235002; URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.98.235002>.
18. H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, and K. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.* **98**(9), 091106 (2011); issn: 0003-6951, 1077-3118; doi: 10.1063/1.3560062; URL: <https://pubs.aip.org/apl/article/98/9/091106/562284/Single-cycle-terahertz-pulses-with-amplitudes>.
19. C.P. Hauri, C. Ruchert, C. Vicario, and F. Ardana, *Appl. Phys. Lett.* **99**(16), 161116 (2011); issn: 0003-6951, 1077-3118; doi: 10.1063/1.3655331; URL: <https://pubs.aip.org/apl/article/99/16/161116/341147/Strong-field-single-cycle-THz-pulses-generated-in>.
20. C. Vicario, M. Jazbinsek, A.V. Ovchinnikov, O.V. Chefonov, S.I. Ashitkov, M.B. Agranat, and C.P. Hauri, *Opt. Express* **23**(4), 4573 (2015); issn: 1094-4087; doi: 10.1364/OE.23.004573; URL: <https://opg.optica.org/abstract.cfm?URI=oe-23-4-4573>.
21. C. Vicario, C. Ruchert, and C. Hauri, *J. Mod. Opt.* **62**(18), 1480 (2015); issn: 0950-0340, 1362-3044; doi: 10.1080/09500340.2013.800242; URL: <http://www.tandfonline.com/doi/full/10.1080/09500340.2013.800242>.
22. Д.З. Сулейманова, Н.А. Жидовцев, Ф.В. Потемкин, *Письма в ЖЭТФ* **115**(1), 71 (2022); issn: 0370274X; doi: 10.31857/S1234567822020021; URL: <https://elibrary.ru/item.asp?id=47484139>.
23. M. Shalaby, C. Vicario, K. Thirupugalmanni, S. Brahadeeswaran, and C.P. Hauri, *Optics Letters* **41**(8), 1777 (2016); issn: 0146-9592, 1539-4794; doi: 10.1364/OL.41.001777; URL: <https://opg.optica.org/abstract.cfm?URI=ol-41-8-1777>.
24. K. Shibuya, K. Nawata, Y. Nakajima, Y. Fu, E.J. Takahashi, K. Midorikawa, T. Yasui, and H. Minamide, *Appl. Phys. Express* **14**(9), 092004 (2021); issn: 1882-0778, 1882-0786; doi: 10.35848/1882-0786/ac1a48; URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.35848/1882-0786/ac1a48>.
25. A. Sinko, I. Ozheredov, E. Rudneva, V. Manomenova, N. Kozlova, N. Lobova, A. Voloshin, J.-L. Coutaz, and A. Shkurinov, *Electronics* **11**(17), 2731 (2022); issn: 2079-9292; doi: 10.3390/electronics11172731; URL: <https://www.mdpi.com/2079-9292/11/17/2731>.
26. K. Miyamoto, S. Ohno, M. Fujiwara, H. Minamide, H. Hashimoto, and H. Ito, *Opt. Express* **17**(17), 14832 (2009); issn: 1094-4087; doi: 10.1364/OE.17.014832; URL: <https://opg.optica.org/abstract.cfm?URI=oe-17-17-14832>.
27. H. Zhao, Y. Tan, T. Wu, G. Steinfeld, Y. Zhang, C. Zhang, L. Zhang, and M. Shalaby, *Appl. Phys. Lett.* **114**(24), 241101 (2019); issn: 0003-6951, 1077-3118; doi: 10.1063/1.5098855; URL: <https://pubs.aip.org/apl/article/114/24/241101/594347/Efficient-broadband-terahertz-generation-from>.
28. Б.В. Румянцев, А.В. Пушкин, Д.З. Сулейманова, Н.А. Жидовцев, Ф.В. Потемкин, *Письма в ЖЭТФ* **117**(8), 571 (2023); doi: 10.31857/S1234567823080025; URL: http://jetpletters.ru/ps/2418/article_35643.shtml.
29. С.А. Ахманов, С.Ю. Никитин, *Физическая оптика*, Издательство Московского Университета, М. (2004).
30. F. Roeder, M. Shalaby, B. Beleites, F. Ronneberger, and A. Gopal, *Opt. Express* **28**(24), 36274 (2020).
31. K. Yee, *IEEE Trans. Antennas Propag.* **14**(3), 302 (1966); issn: 0018-926X, 1558-2221; doi: 10.1109/TAP.1966.1138693; URL: <https://ieeexplore.ieee.org/document/1138693/>.
32. B. Wei, L. Cao, F. Wang, and Q. Yang, *Int. J. Antennas Propag.* **2014**, 1 (2014); issn: 1687-5869, 1687-5877; doi: 10.1155/2014/216763; URL: <https://www.hindawi.com/journals/ijap/2014/216763/>.
33. J.E. Houle and D.M. Sullivan, *Electromagnetic simulation using the FDTD method with Python*, third edition, Hoboken, NJ, Wiley (2020), 198 c.; ISBN: 978-1-119-56580-2.
34. M. Farooqui, N. Dixit, A. Mishra, V. Kumar, A.N. Kaul, A.K. Gupta, *J. Opt.* **43**(2), 137 (2014); issn: 0972-8821, 0974-6900; doi: 10.1007/s12596-014-0184-y; URL: <http://link.springer.com/10.1007/s12596-014-0184-y>.
35. A. Voronin and A. Zheltikov, *Sci. Rep.* **7**(1), 46111 (2017).
36. Z. Wang, W. Sun, A. Chen, I. Kosilkin, D. Bale, and L.R. Dalton, *Optics Letters* **36**(15), 2853 (2011); issn: 0146-9592, 1539-4794; doi:10.1364/OL.36.002853; URL: <https://opg.optica.org/abstract.cfm?URI=ol-36-15-2853>.
37. Z.B. Zaccardi, I.C. Tangen, G.A. Valdivia-Berroeta, C.B. Bahr, K.C. Kenney, C. Rader, M.J. Lutz, B.P. Hunter, D.J. Michaelis, and J.A. Johnson, *Opt. Express* **29**(23), 38084 (2021).
38. I.C. Tangen, G.A. Valdivia-Berroeta, L.K. Heki, Z.B. Zaccardi, E.W. Jackson, C.B. Bahr, S.-H. Ho, D.J. Michaelis, and J.A. Johnson, *J. Opt. Soc. Am.* **38**(9), 2780 (2021); issn: 0740-3224, 1520-8540; doi: 10.1364/JOSAB.420597; URL: <https://opg.optica.org/abstract.cfm?URI=josab-38-9-2780>.
39. T. Hattori and K. Takeuchi, *Opt. Express* **15**(13), 8076 (2007); issn: 1094-4087; doi: 10.1364/OE.15.008076; URL: <https://opg.optica.org/oe/abstract.cfm?uri=oe-15-13-8076>.
40. Y. Zhang, X. Zhang, S. Li, J. Gu, Y. Li, Z. Tian, C. Ouyang, M. He, J. Han, and W. Zhang, *Sci. Rep.* **6**(1), 26949 (2016).